

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re Application of:
K. Mori, et al.

Serial No.: **Corresponding to PCT/JP03/00601**
Filed January 23, 2003

Filed: **Concurrently herewith**

For: **Electrode Structure**

CLAIM FOR PRIORITY

Commissioner for Patents
P.O. Box 1450
Alexandria, VA 22313-1450

Sir:

The benefit of the filing date of the following prior foreign application filed in Japan is hereby requested for the above identified application and the priority provided in 35 U.S.C. 365 is hereby claimed:

Japanese patent application No. 2002-15305 filed January 24, 2002

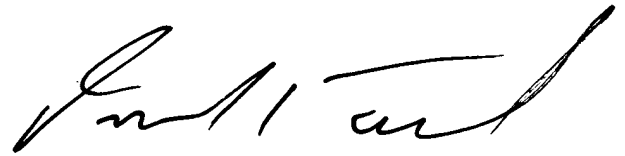
In support of this claim, a certified copy of said original foreign application was filed with the International Bureau on March 21, 2003, as evidenced by form PCT/IB/304, which is attached.

DOCKET NO. MUR-040-USA-PCT

It is requested that the file of this application be marked to indicate that the requirements of 35 U.S.C. 365 have been fulfilled and that the Patent and Trademark Office kindly acknowledge receipt of these documents.

Respectfully submitted,

TOWNSEND & BANTA

A handwritten signature in dark ink, appearing to read 'Donald E. Townsend', written over a horizontal line.

Donald E. Townsend
Reg. No. 22,069

A handwritten signature in dark ink, appearing to read 'Donald E. Townsend, Jr.', written over a horizontal line.

Donald E. Townsend, Jr.
Reg. No. 43,198

CUSTOMER NO.: 27955

TOWNSEND & BANTA
Suite 900, South Building
601 Pennsylvania Ave., N.W.
Washington, D.C. 20004
(202) 220-3124

Date: July 21, 2004

Rec'd PCT/PTO 21 JUL 2004

PCT/JP03/00601

日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

23.01.03

#2

13/501948
別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出願年月日
Date of Application:

2002年 1月24日

出願番号
Application Number:

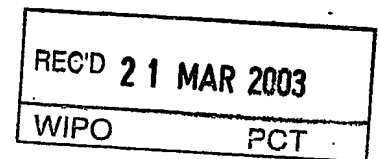
特願2002-015305

[ST.10/C]:

[JP2002-015305]

出願人
Applicant(s):

久光製薬株式会社
共同印刷株式会社

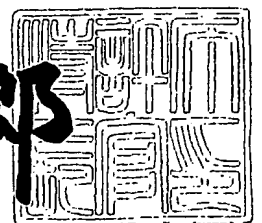


PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

2003年 3月 4日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

太田信一郎



出証番号 出証特2003-3012532

【書類名】 特許願

【整理番号】 HM1015

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 A61N 1/30

【発明者】

 【住所又は居所】 茨城県つくば市観音台1丁目25番11号 久光製薬株式会社筑波研究所内

 【氏名】 森 健二

【発明者】

 【住所又は居所】 茨城県つくば市観音台1丁目25番11号 久光製薬株式会社筑波研究所内

 【氏名】 前田 浩幸

【発明者】

 【住所又は居所】 茨城県つくば市観音台1丁目25番11号 久光製薬株式会社筑波研究所内

 【氏名】 西 芳弘

【発明者】

 【住所又は居所】 茨城県つくば市観音台1丁目25番11号 久光製薬株式会社筑波研究所内

 【氏名】 有本 哲也

【発明者】

 【住所又は居所】 茨城県つくば市観音台1丁目25番11号 久光製薬株式会社筑波研究所内

 【氏名】 肥後 成人

【発明者】

 【住所又は居所】 茨城県つくば市観音台1丁目25番11号 久光製薬株式会社筑波研究所内

 【氏名】 佐藤 秀次

【発明者】

【住所又は居所】 東京都文京区小石川4丁目14番12号 共同印刷株式会社内

【氏名】 小川 達也

【発明者】

【住所又は居所】 東京都文京区小石川4丁目14番12号 共同印刷株式会社内

【氏名】 高橋 抄織

【発明者】

【住所又は居所】 東京都文京区小石川4丁目14番12号 共同印刷株式会社内

【氏名】 瀧田 泰司

【特許出願人】

【識別番号】 000160522

【氏名又は名称】 久光製薬株式会社

【特許出願人】

【識別番号】 000162113

【氏名又は名称】 共同印刷株式会社

【代理人】

【識別番号】 100098110

【弁理士】

【氏名又は名称】 村山 みどり

【選任した代理人】

【識別番号】 100090583

【弁理士】

【氏名又は名称】 田中 清

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 051046

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 電極構造体

【特許請求の範囲】

【請求項1】 絶縁性基材と、分極性電極となり得る成分を主成分とする導電性ペーストまたは金属箔からなり、前記絶縁性基材上にそれを貫通しないように積層された分極成分層（第一層）と、非分極性電極となり得る成分を主成分とする導電性ペーストからなり、前記分極成分層上に設けられた非分極成分層（第二層）とを含む構造を有することを特徴とする電極構造体。

【請求項2】 分極性電極となり得る成分が、カーボン、白金、金、アルミ及びチタンから選択される1種または2種以上であることを特徴とする請求項1記載の電極構造体。

【請求項3】 非分極性電極となり得る成分が、銀、塩化銀、銅及び塩化銅から選択される1種または2種以上であることを特徴とする請求項1記載の電極構造体。

【請求項4】 非分極性電極の面積が、 $1 \sim 10 \text{ cm}^2$ であることを特徴とする請求項1記載の電極構造体。

【請求項5】 分極成分層の厚さが、 $1 \sim 100 \mu\text{m}$ であることを特徴とする請求項1記載の電極構造体。

【請求項6】 非分極成分層の厚さが、 $5 \sim 500 \mu\text{m}$ であることを特徴とする請求項1記載の電極構造体。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、病気の治療や診断の医療分野において用いられる生体適用用の電極構造体に関する。より詳しく言うと、本発明は、電気的エネルギーを利用して生理活性物質を生体内へ送達するための装置や、生体内から生体外へ診断物質を抽出するための装置に利用されることができる電極構造体に関するものである。

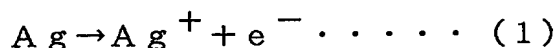
【0002】

【従来技術】

イオントフォレーシス (Acta Dermatol venereol、64 巻、93 ページ、1984 年) や、エレクトロポレーション (特公平3-502 416 号公報、Proc. Natl. Acad. Sci. USA、90 巻、10 504~10508 ページ、1993 年) は、電氣的なエネルギーを用いて皮膚 や粘膜から生理活性物質を生体内へ送達する方法である。

また、イオントフォレーシスと同じ原理を用いて、生体内から診断物質を取り 出し、病状を観察する方法が用いられている (Nature Medicine 1 巻、1198~1201 ページ、1995 年)。

これらの生理活性物質の送達や、診断物質の取り出し等の装置において、電極 は必要とされ、電極には一般に非分極性の成分が用いられている。非分極性電極 は電極と溶液間で分極を起こさず、pH の変化を生じさせない等の利点を有する ものの、電極自身が活性で、化学変化を起こすため、通電できる時間は電極成分 の量に依存している。例えば銀を陽極として用いた場合、銀は非分極性電極とし て作用するが、その場合、銀は下記式 (1) に従って、イオン化する。



銀の量と流せる電流の関係は、式 (1) とファラデーの法則に従って、銀 1 モ ルに対して 1 ファラデーの電気量が通電可能である。

【0003】

一方、上記装置に用いられる電極は、製法の簡便さから、導電性ペーストを用 い、印刷技術によって薄膜化したものが用いられる。例えば、銀を例に挙げれば 、銀の含量が 90~95% の導電性ペーストを、スクリーン印刷技術などによっ て薄膜化して電極として用いられる。

しかし、このように導電性ペーストを用いて作成した電極は、ファラデー則に 従わず、ファラデー則と電極成分含有量から求めた電気量の約 $1/2 \sim 1/10$ 程度しか通電できないという問題点があった。このため、ペースト成分は厚くな り、製造コストの上昇や成型時の割れなどの問題が生じていた。

【0004】

なお、分極成分、非分極成分の両者を用いた電極構造に関する従来例として、 WO97/06848 や特開 2000-176024 号公報に記載の技術がある

前者（W O 9 7 / 0 6 8 4 8）は、同一平面上に分極性電極、非分極性電極を配し、どちらか一方のみから通電することにより、皮膚に電気化学的な作用を促し、生理活性物質の透過を促進するものである。また、後者（特開 2 0 0 0 - 1 7 6 0 2 4 号公報）は、カーボン等で絶縁性基材を貫き、絶縁性基材のカーボン層を有する面とは逆の面から端子部を作成し、さらにこの電極構造体（小電極）の複数を互いに絶縁し、同一平面上に配したものを 1 つの電極としたものである。この電極は、通電を小電極毎に個別に行い、電気密度均一に電流を流すことに成功したものである。

しかし、これらの例は、複数の小電極に分けているため、生産性が悪く、また複数の端子部が絶縁基材を貫いているため、通電時に複数の端子を接続しなければならないなどの問題点を有していた。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】

本発明は、上記のような従来技術の問題点を解決することを課題とするものである。

即ち、本発明は、導電性ペーストのような非分極性電極の成分となり得る材料を効率よく使用し（反応させ）、その非分極性電極としての効果を十分に発揮させ、非分極性電極としての性能を維持することができる電極構造体を提供することを目的とする。この目的を達成するために、特に、下記（１）～（３）の点を考慮した。

（１） 非分極性電極となり得る成分の量を増加させなくても、より長期間の通電を可能にする。

（２） 非分極性電極としての性能を損なわないようにする。即ち、p H の変化を生じさせない。

（３） 電極として簡便な構造を有し、簡便な方法で製造でき、簡便に使用できるものを提供する。

【0006】

【課題を解決するための手段】

本発明者らは、上記課題を解決するために検討を行った結果、下記の構成を有する発明を完成することができた。

即ち、本発明は、絶縁性基材と、分極性電極となり得る成分を主成分とする導電性ペーストまたは金属箔からなり、前記絶縁性基材上にそれを貫通しないように積層された分極成分層（第一層）と、非分極性電極となり得る成分を主成分とする導電性ペーストからなり、前記分極成分層上に設けられた非分極成分層（第二層）とを含む構造を有することを特徴とする電極構造体である。

本発明は、分極性電極となり得る成分が、カーボン、白金、金、アルミ及びチタンから選択される１種または２種以上であることを特徴とする前記電極構造体である。

本発明は、非分極性電極となり得る成分が、銀、塩化銀、銅及び塩化銅から選択される１種または２種以上であることを特徴とする前記電極構造体である。

本発明は、非分極性電極の面積が、 $1 \sim 10 \text{ cm}^2$ であることを特徴とする前記電極構造体である。

本発明は、分極成分層の厚さが、 $1 \sim 100 \mu\text{m}$ であることを特徴とする前記電極構造体である。

本発明は、非分極成分層の厚さが、 $5 \sim 500 \mu\text{m}$ であることを特徴する電極構造体である。

【 0 0 0 7 】

【発明の実施の形態】

以下、本発明を詳細に説明する。

本発明の電極構造体は、図 1（a）断面図、（b）平面図に示されるように、絶縁性基材 1 3 と、分極性電極となり得る成分を主成分とする導電性ペーストまたは金属箔からなり、前記絶縁性基材の片側平面上にそれを貫通しないように積層された分極成分層（第一層） 1 2 と、非分極性電極となり得る成分を主成分とする導電性ペーストからなり、前記分極成分層（第一層）上に設けられた非分極成分層（第二層） 1 1 とを含む構造を有することを特徴とする。

このように構成された本発明の電極構造体は、電源部との接続端子を複数個取ることなく、また絶縁基材を貫通することもなく、絶縁性基材 1 3、分極成分層

1 2、非分極性分層 1 1 の主 3 層構造を有する。

【 0 0 0 8 】

なお、本発明と同様、分極成分、非分極成分の両者を用いた電極構造に関する従来例として、上記 W O 9 7 / 0 6 8 4 8 や特開 2 0 0 0 - 1 7 6 0 2 4 号公報に記載の技術があるが、いずれも本発明とは異なるものであり、上記したような課題を有するものであった。

本発明においては、これらの従来技術の課題を解決するために、端子を絶縁基材のカーボン層と同一平面上から出し（絶縁性基材のカーボン層とは逆ではない面）、さらに複数の細かい電極に分けないことにより、生産性を上げ、使用時の煩雑性も回避することが可能となった。

即ち、本発明の電極構造体は、電流の流れを改善し、かつ生産性、使用時の容易さを考慮したものである。

【 0 0 0 9 】

本発明において、絶縁性基材 1 3 としては、分極成分層 1 2 を積層でき、絶縁性があるものであれば特に限定されないが、例えば、ポリエチテンテレフタレート、ポリイミド、ポリアミド、ポリプロピレン等が挙げられる。これらは単体フィルムまたは複合体フィルムとして用いてもよく、また導電性の金属フォイル等をこれら絶縁フィルムでコーティングしたものを絶縁基材として用いてもよい。後者の例としては、図 2 に示すアルミフォイル 2 1 をポリエチレンテレフタレート 2 2 でコーティングしたものが挙げられる。

【 0 0 1 0 】

分極成分層（第一層） 1 2 を構成する分極性電極となり得る成分としては、例えば、カーボン、白金、金、アルミ、チタン等が挙げられ、1 種または 2 種以上が用いられるが、これらに限定されない。これらの中で、カーボンは安価で導電性ペーストとして市販されており、特に有用である。この分極成分層の厚さは特に限定されないが、1 ~ 1 0 0 μ m が好ましく、柔軟性と割れ等の破損が起こりにくい厚さとして 3 ~ 5 0 μ m が特に好ましい。分極性電極はそれ自体変化しないので、電流を流すことができればよいが、分極成分層の厚さが 1 μ m 未満となると、スクリーン印刷により均一性を保つことが難しく、期待した形状に作成で

きなかったり、金属箔としても成型が困難になるなど分極性電極が均一に平面にできなくなる。また、厚さが $100\mu\text{m}$ を超えると、導電性ペースト等で作成した場合、もろくなり破壊しやすくなる。

【0011】

また、非分極成分層（第二層）を構成する非分極性電極となり得る成分としては、陽極側には銀、銅等、陰極側には塩化銀、塩化銅等を主成分とする銀／塩化銀等の混合物が挙げられる、1種または2種以上が用いられるが、これらに限定されない。これらの中で、特に銀（陽極側）や銀／塩化銀（陰極側）が好ましい。この非分極成分層の厚さは、通電する電気総量にもよるが、 $5\sim 500\mu\text{m}$ が好ましく、電極の柔軟性を考慮すると $10\sim 400\mu\text{m}$ がより好ましく、 $25\sim 100\mu\text{m}$ 程度が特に好ましい。非電極性電極はそれ自体が変化するために、非分極成分層の厚さが $5\mu\text{m}$ 未満となると、均一性を保つことが難しく、一部分でも薄い部位があるとその部位が通電により変化し、絶縁を生じるなどの問題がある。一方、 $500\mu\text{m}$ を超えると、銀や銀／塩化銀の導電性ペーストなどで作成した場合、もろくなり破壊しやすくなる。

なお、本発明の非分極性電極の面積は、 $1\sim 10\text{cm}^2$ であることが好ましい。この面積が 1cm^2 未満となると、電極の作成が困難であり、 10cm^2 を超えると、製剤の形状として大きくなりすぎて、貼付しづらくなる。

【0012】

本発明の電極構造体は、上記した絶縁性基材、分極成分層及び非分極成分層を定法により積層することにより製造することができる。

本発明の電極は、生体に貼付する場合であればどのような目的に対しても使用可能である。例えば、診断用の心電図、グルコウォッチ（特公平10-505761号公報）に記載されているような電極に代表されるような、電流を流して生体内から診断物質を非侵襲的に取り出す装置や、薬物や生理活性物質投与するためのエレクトロポレーションやイオントフォレーシスの電極として用いることができる。イオントフォレーシス用の電極として用いる場合には、特公平11-54855号公報や特公平10-234864号公報等に記載の電極構造体に応用可能である。

【0013】

【実施例】

以下、本発明に係る電極を用いて通電した実施例と、従来技術を用いて通電した比較例を示す。

(実施例1)

本発明の電極の作成：絶縁性基材13として、ポリエチレンテレフタレートフィルムを用い、このフィルム上に、カーボンを主成分とする導電性ペーストを $10\mu\text{m}$ 塗工（第一層12）した。さらに、そのカーボン上に、銀を主成分とする導電性ペーストを数種類の厚さで塗工（第二層11）した。銀ペーストの乾燥後の厚さは、それぞれ15、23、32、38、 $51\mu\text{m}$ であった。

参照電極の作成：純度99.99%以上の銀を含む銀板を2枚用意し、それぞれ陽極、陰極として、生理食塩水中で $1\text{mA}/\text{cm}^2$ で6時間通電した。このとき、陽極側の反応した電極（銀/塩化銀電極）を参照電極とした。

通電量測定：本発明の電極を陽極、参照電極を陰極として、 $0.05\text{mA}/\text{cm}^2$ を通電し、電圧を測定しながら通電を続けた。初期に比べ1ボルト以上の電圧に達した時に通電を止め、その点を通電終了時間とした。単位面積当たりの通電量は以下の式で求めた。

$$\text{単位面積当たりの通電量} = 0.05 \times \text{通電終了時間（分）} \cdots \cdots (2)$$

【0014】

(比較例1)

電極の作成：絶縁性基材として、ポリエチレンテレフタレートフィルムを用い、このフィルム上に、銀を主成分とする導電性ペーストを数種類の厚さで塗工した。銀ペーストの乾燥後の厚さは、それぞれ14、22、32、38、 $49\mu\text{m}$ であった。

参照電極：実施例1の参照電極と同様にして作成した。

通電量測定：比較例の電極を陽極、参照電極を陰極として、実施例1と同様に通電を行い、通電量を測定した。

実施例1、比較例1の結果を図3に示す。また、理論値も図3に示した。

図3から明らかなように、実施例1では、ほぼ理論値に近い通電量を示したの

に対し、比較例では、18～33%程度の銀しか利用されていなかった。

すなわち、本発明の電極によれば、非分極性成分である銀の利用効率が向上し、通電量が増加することが確認された。

【0015】

【発明の効果】

本発明の電極構造体によれば、導電性ペーストのような非分極性電極の成分となり得る材料を効率よく使用し、その非分極性電極としての効果を十分に発揮させることができ、その性能を維持することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】

本発明の電極構造体の一例を示す図であり、(a)は断面図、(b)は平面図である。

【図2】

アルミフィルムにポリエチレンテレフタレートをコーティング（ラミネート）して作成した絶縁体基材13を示す図である。

【図3】

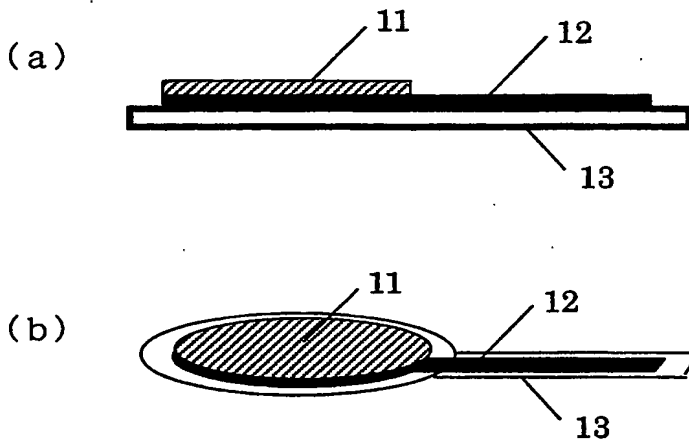
本発明の実施例と比較例による通電量を示すグラフである。

【符号の説明】

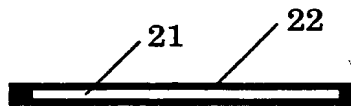
- 11 非分極成分層
- 12 分極成分層
- 13 絶縁性基材
- 21 アルミフイルム
- 22 ポリエチレンテレフタレート

【書類名】 図面

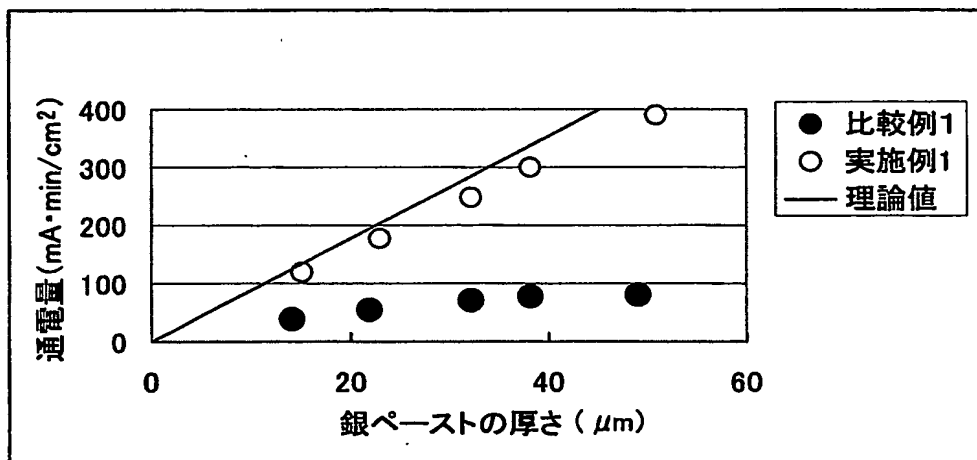
【図1】



【図2】



【図3】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 非分極性電極の成分となり得る材料を効率よく使用し、その非分極性電極としての効果を十分に発揮させ、その性能を維持することができる電極構造体を提供する。

【解決手段】 電極構造体が、絶縁性基材と、分極性電極となり得る成分を主成分とする導電性ペーストまたは金属箔からなり、前記絶縁性基材上にそれを貫通しないように積層された分極成分層（第一層）と、非分極性電極となり得る成分を主成分とする導電性ペーストからなり、前記分極成分層上に設けられた非分極成分層（第二層）とを含む構造を有する。

【選択図】 図 1

認定・付加情報

特許出願の番号	特願2002-015305
受付番号	50200089140
書類名	特許願
担当官	第四担当上席 0093
作成日	平成14年 1月25日

<認定情報・付加情報>

【提出日】	平成14年 1月24日
-------	-------------

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000160522]

1. 変更年月日	1990年 9月13日
[変更理由]	新規登録
住 所	佐賀県鳥栖市田代大官町408番地
氏 名	久光製薬株式会社

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000162113]

1. 変更年月日 1990年 8月28日

[変更理由] 新規登録

住 所 東京都文京区小石川4丁目14番12号

氏 名 共同印刷株式会社